

明 細 書

ポリアミノピリジン類およびその製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は、ポリアミノピリジン類およびその製造方法に関する。さらに詳しくは、電池用活物質、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料等に用いられる新規なポリアミノピリジン類およびその製造方法に関する。

背景技術

- [0002] ポリアミノピリジン類は、コンデンサー、静電気防止剤、ICボード、電子ビームIC回路パターンニング等の導電機能を利用した用途、バッテリー、エレクトロルミネッセンス素子等の酸化還元機能を利用した用途、トランジスター、ダイオード、太陽電池等の電子デバイス機能を利用した用途、光伝導材料、高度光通信用素子(非線形光学素子)、光コンピューター等の光機能を利用した用途の他、電磁波シールド材、プラスチック磁石等に利用されている。
- [0003] このようなポリアミノピリジン類としては、例えば、アミノピリジン類を酸化重合して得られるポリアミノピリジン類が知られている[特開昭61-85440号公報(特許文献1)参照]。
- [0004] しかしながら、アミノピリジンを酸化重合して得られるポリアミノピリジン類は、ピリジン環が様々な位置で結合したポリマーであり、一部分岐していたり、架橋しているため、種々の溶媒への溶解性が低く、その用途が著しく制限されている。したがって、種々の溶媒への溶解性に優れた新規なポリアミノピリジン類の開発が望まれている。
- [0005] 特許文献1:特開昭61-85440号公報

発明の開示

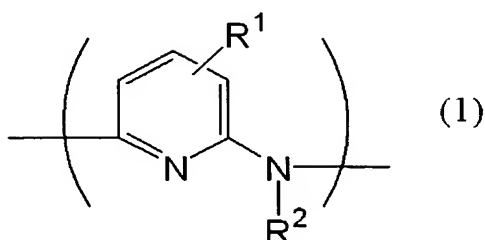
発明が解決しようとする課題

- [0006] 本発明の目的は、種々の溶媒への溶解性に優れ、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料に好適に用いられる新規なポリアミノピリジン類およびその製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] すなわち、本発明は、下記一般式(1)；

[0008] [化1]



で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類に関する。

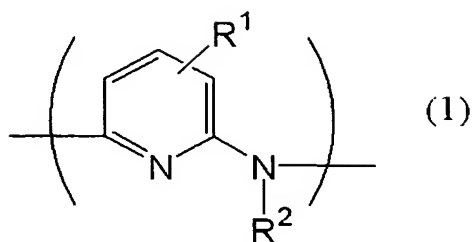
[0009] 第1の局面において、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいフェニル基または置換基を有してもよいピリジル基を示す。特に、 R^1 が水素原子であって、 R^2 がフェニル基またはピリジル基であるポリアミノピリジン類が好ましい。

[0010] 第2の局面において、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいピリミジル基、置換基を有してもよいナフチル基または置換基を有してもよいキノリル基を示す。特に、 R^1 が水素原子であって、 R^2 がピリミジル基、ナフチル基またはキノリル基であるポリアミノピリジン類が好ましい。

[0011] 第3の局面において、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいアントリル基または置換基を有してもよいピレニル基を示す。特に、 R^1 が水素原子であって、 R^2 がアントリル基またはピレニル基であるポリアミノピリジン類が好ましい。

[0012] また、本発明は、下記一般式(1)；

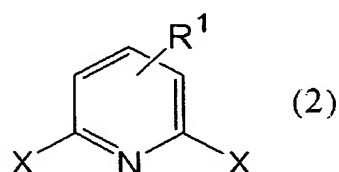
[0013] [化2]



(式中、 R^1 および R^2 は上記定義と同様である。) で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類の製造方法に関する。

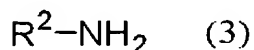
[0014] 本発明によるポリアミノピリジン類の製造方法において、下記一般式(2)；

[0015] [化3]



(式中、 R^1 は前記一般式(1)と同様である。また、Xはハロゲン原子を示す。) で表される2, 6-ジハロゲノピリジン類と下記一般式(3)；

[0016] [化4]



(式中、 R^2 は前記一般式(1)と同様である。)

で表される芳香族アミン化合物とを、パラジウム化合物およびホスフィン化合物を触媒とし、塩基の存在下、反応させることを特徴とする。

発明の効果

[0017] 本発明によると、種々の溶媒への溶解性に優れ、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料に好適に用いられる新規なポリアミノピリジン類を提供することができる。

発明を実施するための最良の形態

[0018] 本発明のポリアミノピリジン類は、上記一般式(1)で表される化合物である。

上記一般式(1)において、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキ

シ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいフェニル基、置換基を有してもよいピリジル基、置換基を有してもよいピリミジル基、置換基を有してもよいナフチル基、置換基を有してもよいキノリル基、置換基を有してもよいアントリル基または置換基を有してもよいピレニル基を示す。

[0019] 炭素数1〜10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソペンチル基、ネオペンチル基、*n*-ヘキシル基、イソヘキシル基、*n*-オクチル基、*n*-デシル基等が挙げられる。

[0020] アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。

[0021] アルカノイル基としては、メタノイル基、エタノイル基等が挙げられる。

[0022] 置換基を有してもよいフェニル基としては、フェニル基、2-メチルフェニル基、2-エチルフェニル基、2-*n*-ヘキシルフェニル基、2-*n*-オクチルフェニル基、2-*n*-デシルフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-*n*-ヘキシルフェニル基、4-*n*-オクチルフェニル基、4-*n*-デシルフェニル基、2, 4-ジメチルフェニル基、2, 4-ジエチルフェニル基、2, 4-ジ-*n*-ヘキシルフェニル基、2, 4-ジ-*n*-オクチルフェニル基、2, 4-ジ-*n*-デシルフェニル基、2-メトキシフェニル基、2-メタノイルフェニル基、2-カルバモイルフェニル基、2-シアノフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-メタノイルフェニル基、4-カルバモイルフェニル基、4-シアノフェニル基等が挙げられる。

[0023] 置換基を有してもよいピリジル基としては、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、3-メチル-2-ピリジル基、3-エチル-2-ピリジル基、3-*n*-ヘキシル-2-ピリジル基、3-*n*-オクチル-2-ピリジル基、3-*n*-デシル-2-ピリジル基、5-メチル-2-ピリジル基、5-エチル-2-ピリジル基、5-*n*-ヘキシル-2-ピリジル基、5-*n*-オクチル-2-ピリジル基、5-*n*-デシル-2-ピリジル基、2-メチル-3-ピリジル基、2-エチル-3-ピリジル基、2-*n*-ヘキシル-3-ピリジル基、2-*n*-オクチル-3-ピリジル基、2-*n*-デシル-3-ピリジル基、4-メチル-3-ピリジル基、4-エチル-3-ピリジル基、4-*n*-ヘキシル-3-ピリジル基、4-*n*-オクチル-3-ピリジル基、4-*n*-デシル-3-ピリジル基、6-メチル-3-ピリジル基、6-エチル-3-ピリジル基、6-*n*-ヘキシル-3-

ーピリジル基、6-n-オクチル-3-ピリジル基、6-n-デシル-3-ピリジル基、3-メチル-4-ピリジル基、3-エチル-4-ピリジル基、3-n-ヘキシル-4-ピリジル基、3-n-オクチル-4-ピリジル基、3-n-デシル-4-ピリジル基、5-メチル-4-ピリジル基、5-エチル-4-ピリジル基、5-n-ヘキシル-4-ピリジル基、5-n-オクチル-4-ピリジル基、5-n-デシル-4-ピリジル基、3-メトキシ-2-ピリジル基、3-メタノイル-2-ピリジル基、3-カルバモイル-2-ピリジル基、3-シアノ-2-ピリジル基、5-メトキシ-2-ピリジル基、5-メタノイル-2-ピリジル基、5-カルバモイル-2-ピリジル基、5-シアノ-2-ピリジル基、2-メトキシ-3-ピリジル基、2-メタノイル-3-ピリジル基、2-カルバモイル-3-ピリジル基、2-シアノ-3-ピリジル基、4-メトキシ-3-ピリジル基、4-メタノイル-3-ピリジル基、4-カルバモイル-3-ピリジル基、4-シアノ-3-ピリジル基、6-メトキシ-3-ピリジル基、6-メタノイル-3-ピリジル基、6-カルバモイル-3-ピリジル基、6-シアノ-3-ピリジル基、3-メトキシ-4-ピリジル基、3-メタノイル-4-ピリジル基、3-カルバモイル-4-ピリジル基、3-シアノ-4-ピリジル基、5-メトキシ-4-ピリジル基、5-メタノイル-4-ピリジル基、5-カルバモイル-4-ピリジル基、5-シアノ-4-ピリジル基等が挙げられる。

[0024] 置換基を有してもよいピリミジル基としては、2-ピリミジル基、5-メチル-2-ピリミジル基、5-エチル-2-ピリミジル基、5-n-ヘキシル-2-ピリミジル基、5-n-オクチル-2-ピリミジル基、5-n-デシル-2-ピリミジル基、5-メトキシ-2-ピリミジル基、5-メタノイル-2-ピリミジル基、5-カルバモイル-2-ピリミジル基、5-シアノ-2-ピリミジル基等が挙げられる。

[0025] 置換基を有してもよいナフチル基としては、1-ナフチル基、2-ナフチル基、2-メチル-1-ナフチル基、2-エチル-1-ナフチル基、2-n-ヘキシル-1-ナフチル基、2-n-オクチル-1-ナフチル基、2-n-デシル-1-ナフチル基、3-メチル-1-ナフチル基、3-エチル-1-ナフチル基、3-n-ヘキシル-1-ナフチル基、3-n-オクチル-1-ナフチル基、3-n-デシル-1-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-エチル-1-ナフチル基、4-n-ヘキシル-1-ナフチル基、4-n-オクチル-1-ナフチル基、4-n-デシル-1-ナフチル基、5-メチル-1-ナフチル基、5-エチル-1-ナフチル基、5-n-ヘキシル-1-ナフチル基、5-n-オクチル-1-ナフチル基、5-n-デシル

1-ナフチル基、6-メチル-1-ナフチル基、6-エチル-1-ナフチル基、6-n-ヘキシル-1-ナフチル基、6-n-オクチル-1-ナフチル基、6-n-デシル-1-ナフチル基、7-メチル-1-ナフチル基、7-エチル-1-ナフチル基、7-n-ヘキシル-1-ナフチル基、7-n-オクチル-1-ナフチル基、7-n-デシル-1-ナフチル基、8-メチル-1-ナフチル基、8-エチル-1-ナフチル基、8-n-ヘキシル-1-ナフチル基、8-n-オクチル-1-ナフチル基、8-n-デシル-1-ナフチル基、1-メチル-2-ナフチル基、1-エチル-2-ナフチル基、1-n-ヘキシル-2-ナフチル基、1-n-オクチル-2-ナフチル基、1-n-デシル-2-ナフチル基、3-メチル-2-ナフチル基、3-エチル-2-ナフチル基、3-n-ヘキシル-2-ナフチル基、3-n-オクチル-2-ナフチル基、3-n-デシル-2-ナフチル基、4-メチル-2-ナフチル基、4-エチル-2-ナフチル基、4-n-ヘキシル-2-ナフチル基、4-n-オクチル-2-ナフチル基、4-n-デシル-2-ナフチル基、5-メチル-2-ナフチル基、5-エチル-2-ナフチル基、5-n-ヘキシル-2-ナフチル基、5-n-オクチル-2-ナフチル基、5-n-デシル-2-ナフチル基、6-メチル-2-ナフチル基、6-エチル-2-ナフチル基、6-n-ヘキシル-2-ナフチル基、6-n-オクチル-2-ナフチル基、6-n-デシル-2-ナフチル基、7-メチル-2-ナフチル基、7-エチル-2-ナフチル基、7-n-ヘキシル-2-ナフチル基、7-n-オクチル-2-ナフチル基、7-n-デシル-2-ナフチル基、8-メチル-2-ナフチル基、8-エチル-2-ナフチル基、8-n-ヘキシル-2-ナフチル基、8-n-オクチル-2-ナフチル基、8-n-デシル-2-ナフチル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、2-メタノイル-1-ナフチル基、2-カルバモイル-1-ナフチル基、2-シアノ-1-ナフチル基、3-メトキシ-1-ナフチル基、3-メタノイル-1-ナフチル基、3-カルバモイル-1-ナフチル基、3-シアノ-1-ナフチル基、4-メトキシ-1-ナフチル基、4-メタノイル-1-ナフチル基、4-カルバモイル-1-ナフチル基、4-シアノ-1-ナフチル基、5-メトキシ-1-ナフチル基、5-メタノイル-1-ナフチル基、5-カルバモイル-1-ナフチル基、5-シアノ-1-ナフチル基、6-メトキシ-1-ナフチル基、6-メタノイル-1-ナフチル基、6-カルバモイル-1-ナフチル基、6-シアノ-1-ナフチル基、7-メトキシ-1-ナフチル基、7-メタノイル-1-ナフチル基、7-カルバモイル-1-ナフチル基、7-シアノ-1-ナフチル基、8-メトキシ-1-ナフチル基、8-メタノイル-1-ナフチル基、8-カルバモイル-1-ナ

フチル基、8-シアノ-1-ナフチル基、1-メトキシ-2-ナフチル基、1-メタノイル-2-ナフチル基、1-カルバモイル-2-ナフチル基、1-シアノ-2-ナフチル基、3-メトキシ-2-ナフチル基、3-メタノイル-2-ナフチル基、3-カルバモイル-2-ナフチル基、3-シアノ-2-ナフチル基、4-メトキシ-2-ナフチル基、4-メタノイル-2-ナフチル基、4-カルバモイル-2-ナフチル基、4-シアノ-2-ナフチル基、5-メトキシ-2-ナフチル基、5-メタノイル-2-ナフチル基、5-カルバモイル-2-ナフチル基、5-シアノ-2-ナフチル基、6-メトキシ-2-ナフチル基、6-メタノイル-2-ナフチル基、6-カルバモイル-2-ナフチル基、6-シアノ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチル基、7-メタノイル-2-ナフチル基、7-カルバモイル-2-ナフチル基、7-シアノ-2-ナフチル基、8-メトキシ-2-ナフチル基、8-メタノイル-2-ナフチル基、8-カルバモイル-2-ナフチル基、8-シアノ-2-ナフチル基等が挙げられる。

[0026] 置換基を有してもよいキノリル基としては、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、3-メチル-2-キノリル基、3-エチル-2-キノリル基、3-n-ヘキシル-2-キノリル基、3-n-オクチル-2-キノリル基、3-n-デシル-2-キノリル基、4-メチル-2-キノリル基、4-エチル-2-キノリル基、4-n-ヘキシル-2-キノリル基、4-n-オクチル-2-キノリル基、4-n-デシル-2-キノリル基、5-メチル-2-キノリル基、5-エチル-2-キノリル基、5-n-ヘキシル-2-キノリル基、5-n-オクチル-2-キノリル基、5-n-デシル-2-キノリル基、6-メチル-2-キノリル基、6-エチル-2-キノリル基、6-n-ヘキシル-2-キノリル基、6-n-オクチル-2-キノリル基、6-n-デシル-2-キノリル基、7-メチル-2-キノリル基、7-エチル-2-キノリル基、7-n-ヘキシル-2-キノリル基、7-n-オクチル-2-キノリル基、7-n-デシル-2-キノリル基、8-メチル-2-キノリル基、8-エチル-2-キノリル基、8-n-ヘキシル-2-キノリル基、8-n-オクチル-2-キノリル基、8-n-デシル-2-キノリル基、2-メチル-3-キノリル基、2-エチル-3-キノリル基、2-n-ヘキシル-3-キノリル基、2-n-オクチル-3-キノリル基、2-n-デシル-3-キノリル基、4-メチル-3-キノリル基、4-エチル-3-キノリル基、4-n-ヘキシル-3-キノリル基、4-n-オクチル-3-キノリル基、4-n-デシル-3-キノリル基、5-メチル-3-キノリル基、5-エチル-3-キノリル基、5-n-ヘキシル-3-キノリル基、5-n-オクチル-3-キノリル基、

5-n-デシル-3-キノリル基、6-メチル-3-キノリル基、6-エチル-3-キノリル基、6-n-ヘキシル-3-キノリル基、6-n-オクチル-3-キノリル基、6-n-デシル-3-キノリル基、7-メチル-3-キノリル基、7-エチル-3-キノリル基、7-n-ヘキシル-3-キノリル基、7-n-オクチル-3-キノリル基、7-n-デシル-3-キノリル基、8-メチル-3-キノリル基、8-エチル-3-キノリル基、8-n-ヘキシル-3-キノリル基、8-n-オクチル-3-キノリル基、8-n-デシル-3-キノリル基、2-メチル-4-キノリル基、2-エチル-4-キノリル基、2-n-ヘキシル-4-キノリル基、2-n-オクチル-4-キノリル基、2-n-デシル-4-キノリル基、3-メチル-4-キノリル基、3-エチル-4-キノリル基、3-n-ヘキシル-4-キノリル基、3-n-オクチル-4-キノリル基、3-n-デシル-4-キノリル基、5-メチル-4-キノリル基、5-エチル-4-キノリル基、5-n-ヘキシル-4-キノリル基、5-n-オクチル-4-キノリル基、5-n-デシル-4-キノリル基、6-メチル-4-キノリル基、6-エチル-4-キノリル基、6-n-ヘキシル-4-キノリル基、6-n-オクチル-4-キノリル基、6-n-デシル-4-キノリル基、7-メチル-4-キノリル基、7-エチル-4-キノリル基、7-n-ヘキシル-4-キノリル基、7-n-オクチル-4-キノリル基、7-n-デシル-4-キノリル基、8-メチル-4-キノリル基、8-エチル-4-キノリル基、8-n-ヘキシル-4-キノリル基、8-n-オクチル-4-キノリル基、8-n-デシル-4-キノリル基、3-メトキシ-2-キノリル基、3-メタノイル-2-キノリル基、3-カルバモイル-2-キノリル基、3-シアノ-2-キノリル基、4-メトキシ-2-キノリル基、4-メタノイル-2-キノリル基、4-カルバモイル-2-キノリル基、4-シアノ-2-キノリル基、5-メトキシ-2-キノリル基、5-メタノイル-2-キノリル基、5-カルバモイル-2-キノリル基、5-シアノ-2-キノリル基、6-メトキシ-2-キノリル基、6-メタノイル-2-キノリル基、6-カルバモイル-2-キノリル基、6-シアノ-2-キノリル基、7-メトキシ-2-キノリル基、7-メタノイル-2-キノリル基、7-カルバモイル-2-キノリル基、7-シアノ-2-キノリル基、8-メトキシ-2-キノリル基、8-メタノイル-2-キノリル基、8-カルバモイル-2-キノリル基、8-シアノ-2-キノリル基、2-メトキシ-3-キノリル基、2-メタノイル-3-キノリル基、2-カルバモイル-3-キノリル基、2-シアノ-3-キノリル基、4-メトキシ-3-キノリル基、4-メタノイル-3-キノリル基、4-カルバモイル-3-キノリル基、4-シアノ-3-キノリル基、5-メトキシ-3-キノリル基、5-メタノイル-3-キノリル基、5-カルバモイル-3-キノリル基、5

ーシアノ-3-キノリル基、6-メトキシ-3-キノリル基、6-メタノイル-3-キノリル基、6-カルバモイル-3-キノリル基、6-シアノ-3-キノリル基、7-メトキシ-3-キノリル基、7-メタノイル-3-キノリル基、7-カルバモイル-3-キノリル基、7-シアノ-3-キノリル基、8-メトキシ-3-キノリル基、8-メタノイル-3-キノリル基、8-カルバモイル-3-キノリル基、8-シアノ-3-キノリル基、2-メトキシ-4-キノリル基、2-メタノイル-4-キノリル基、2-カルバモイル-4-キノリル基、2-シアノ-4-キノリル基、3-メトキシ-4-キノリル基、3-メタノイル-4-キノリル基、3-カルバモイル-4-キノリル基、3-シアノ-4-キノリル基、5-メトキシ-4-キノリル基、5-メタノイル-4-キノリル基、5-カルバモイル-4-キノリル基、5-シアノ-4-キノリル基、6-メトキシ-4-キノリル基、6-メタノイル-4-キノリル基、6-カルバモイル-4-キノリル基、6-シアノ-4-キノリル基、7-メトキシ-4-キノリル基、7-メタノイル-4-キノリル基、7-カルバモイル-4-キノリル基、7-シアノ-4-キノリル基、8-メトキシ-4-キノリル基、8-メタノイル-4-キノリル基、8-カルバモイル-4-キノリル基、8-シアノ-4-キノリル基等が挙げられる。

[0027] 置換基を有してもよいアントリル基としては、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、2-メチル-1-アントリル基、2-エチル-1-アントリル基、2-n-ヘキシル-1-アントリル基、2-n-オクチル-1-アントリル基、2-n-デシル-1-アントリル基、3-メチル-1-アントリル基、3-エチル-1-アントリル基、3-n-ヘキシル-1-アントリル基、3-n-オクチル-1-アントリル基、3-n-デシル-1-アントリル基、4-メチル-1-アントリル基、4-エチル-1-アントリル基、4-n-ヘキシル-1-アントリル基、4-n-オクチル-1-アントリル基、4-n-デシル-1-アントリル基、5-メチル-1-アントリル基、5-エチル-1-アントリル基、5-n-ヘキシル-1-アントリル基、5-n-オクチル-1-アントリル基、5-n-デシル-1-アントリル基、6-メチル-1-アントリル基、6-エチル-1-アントリル基、6-n-ヘキシル-1-アントリル基、6-n-オクチル-1-アントリル基、6-n-デシル-1-アントリル基、7-メチル-1-アントリル基、7-エチル-1-アントリル基、7-n-ヘキシル-1-アントリル基、7-n-オクチル-1-アントリル基、7-n-デシル-1-アントリル基、8-メチル-1-アントリル基、8-エチル-1-アントリル基、8-n-ヘキシル-1-アントリル基、8-n-オクチル-1-アントリル基、8-n-デシル-1-アントリル基、9-メチル-1-アントリル基、9-エチル-1-アントリル基、9-n-ヘキシル-1-アン

トリル基、9-n-オクチル-1-アントリル基、9-n-デシル-1-アントリル基、10-メチル-1-アントリル基、10-エチル-1-アントリル基、10-n-ヘキシル-1-アントリル基、10-n-オクチル-1-アントリル基、10-n-デシル-1-アントリル基、1-メチル-2-アントリル基、1-エチル-2-アントリル基、1-n-ヘキシル-2-アントリル基、1-n-オクチル-2-アントリル基、1-n-デシル-2-アントリル基、3-メチル-2-アントリル基、3-エチル-2-アントリル基、3-n-ヘキシル-2-アントリル基、3-n-オクチル-2-アントリル基、3-n-デシル-2-アントリル基、4-メチル-2-アントリル基、4-エチル-2-アントリル基、4-n-ヘキシル-2-アントリル基、4-n-オクチル-2-アントリル基、4-n-デシル-2-アントリル基、5-メチル-2-アントリル基、5-エチル-2-アントリル基、5-n-ヘキシル-2-アントリル基、5-n-オクチル-2-アントリル基、5-n-デシル-2-アントリル基、6-メチル-2-アントリル基、6-エチル-2-アントリル基、6-n-ヘキシル-2-アントリル基、6-n-オクチル-2-アントリル基、6-n-デシル-2-アントリル基、7-メチル-2-アントリル基、7-エチル-2-アントリル基、7-n-ヘキシル-2-アントリル基、7-n-オクチル-2-アントリル基、7-n-デシル-2-アントリル基、8-メチル-2-アントリル基、8-エチル-2-アントリル基、8-n-ヘキシル-2-アントリル基、8-n-オクチル-2-アントリル基、8-n-デシル-2-アントリル基、9-メチル-2-アントリル基、9-エチル-2-アントリル基、9-n-ヘキシル-2-アントリル基、9-n-オクチル-2-アントリル基、9-n-デシル-2-アントリル基、10-メチル-2-アントリル基、10-エチル-2-アントリル基、10-n-ヘキシル-2-アントリル基、10-n-オクチル-2-アントリル基、10-n-デシル-2-アントリル基、1-メチル-9-アントリル基、1-エチル-9-アントリル基、1-n-ヘキシル-9-アントリル基、1-n-オクチル-9-アントリル基、1-n-デシル-9-アントリル基、2-メチル-9-アントリル基、2-エチル-9-アントリル基、2-n-ヘキシル-9-アントリル基、2-n-オクチル-9-アントリル基、2-n-デシル-9-アントリル基、3-メチル-9-アントリル基、3-エチル-9-アントリル基、3-n-ヘキシル-9-アントリル基、3-n-オクチル-9-アントリル基、3-n-デシル-9-アントリル基、4-メチル-9-アントリル基、4-エチル-9-アントリル基、4-n-ヘキシル-9-アントリル基、4-n-オクチル-9-アントリル基、4-n-デシル-9-アントリル基、10-メチル-9-アントリル基、10-エチル-9-アントリル基、10-n-ヘキシル-9-アントリル

基、10-n-オクチル-9-アントリル基、10-n-デシル-9-アントリル基、2-メトキシ-1-アントリル基、2-メタノイル-1-アントリル基、2-カルバモイル-1-アントリル基、2-シアノ-1-アントリル基、3-メトキシ-1-アントリル基、3-メタノイル-1-アントリル基、3-カルバモイル-1-アントリル基、3-シアノ-1-アントリル基、4-メトキシ-1-アントリル基、4-メタノイル-1-アントリル基、4-カルバモイル-1-アントリル基、4-シアノ-1-アントリル基、5-メトキシ-1-アントリル基、5-メタノイル-1-アントリル基、5-カルバモイル-1-アントリル基、5-シアノ-1-アントリル基、6-メトキシ-1-アントリル基、6-メタノイル-1-アントリル基、6-カルバモイル-1-アントリル基、6-シアノ-1-アントリル基、7-メトキシ-1-アントリル基、7-メタノイル-1-アントリル基、7-カルバモイル-1-アントリル基、7-シアノ-1-アントリル基、8-メトキシ-1-アントリル基、8-メタノイル-1-アントリル基、8-カルバモイル-1-アントリル基、8-シアノ-1-アントリル基、9-メトキシ-1-アントリル基、9-メタノイル-1-アントリル基、9-カルバモイル-1-アントリル基、9-シアノ-1-アントリル基、10-メトキシ-1-アントリル基、10-メタノイル-1-アントリル基、10-カルバモイル-1-アントリル基、10-シアノ-1-アントリル基、1-メトキシ-2-アントリル基、1-メタノイル-2-アントリル基、1-カルバモイル-2-アントリル基、1-シアノ-2-アントリル基、3-メトキシ-2-アントリル基、3-メタノイル-2-アントリル基、3-カルバモイル-2-アントリル基、3-シアノ-2-アントリル基、4-メトキシ-2-アントリル基、4-メタノイル-2-アントリル基、4-カルバモイル-2-アントリル基、4-シアノ-2-アントリル基、5-メトキシ-2-アントリル基、5-メタノイル-2-アントリル基、5-カルバモイル-2-アントリル基、5-シアノ-2-アントリル基、6-メトキシ-2-アントリル基、6-メタノイル-2-アントリル基、6-カルバモイル-2-アントリル基、6-シアノ-2-アントリル基、7-メトキシ-2-アントリル基、7-メタノイル-2-アントリル基、7-カルバモイル-2-アントリル基、7-シアノ-2-アントリル基、8-メトキシ-2-アントリル基、8-メタノイル-2-アントリル基、8-カルバモイル-2-アントリル基、8-シアノ-2-アントリル基、9-メトキシ-2-アントリル基、9-メタノイル-2-アントリル基、9-カルバモイル-2-アントリル基、9-シアノ-2-アントリル基、10-メトキシ-2-アントリル基、10-メタノイル-2-アントリル基、10-カルバモイル-2-アントリル基、10-シアノ-2-アントリル基、1-メトキシ-9-アントリル基、1-メタノイル-9-アントリル基、1-カ

ルバモイル-9-アントリル基、1-シアノ-9-アントリル基、2-メトキシ-9-アントリル基、2-メタノイル-9-アントリル基、2-カルバモイル-9-アントリル基、2-シアノ-9-アントリル基、3-メトキシ-9-アントリル基、3-メタノイル-9-アントリル基、3-カルバモイル-9-アントリル基、3-シアノ-9-アントリル基、4-メトキシ-9-アントリル基、4-メタノイル-9-アントリル基、4-カルバモイル-9-アントリル基、4-シアノ-9-アントリル基、10-メトキシ-9-アントリル基、10-メタノイル-9-アントリル基、10-カルバモイル-9-アントリル基、10-シアノ-9-アントリル基等が挙げられる。

[0028] 置換基を有してもよいピレニル基としては、1-ピレニル基、2-ピレニル基、2-メチル-1-ピレニル基、2-エチル-1-ピレニル基、2-n-ヘキシル-1-ピレニル基、2-n-オクチル-1-ピレニル基、2-n-デシル-1-ピレニル基、3-メチル-1-ピレニル基、3-エチル-1-ピレニル基、3-n-ヘキシル-1-ピレニル基、3-n-オクチル-1-ピレニル基、3-n-デシル-1-ピレニル基、4-メチル-1-ピレニル基、4-エチル-1-ピレニル基、4-n-ヘキシル-1-ピレニル基、4-n-オクチル-1-ピレニル基、4-n-デシル-1-ピレニル基、5-メチル-1-ピレニル基、5-エチル-1-ピレニル基、5-n-ヘキシル-1-ピレニル基、5-n-オクチル-1-ピレニル基、5-n-デシル-1-ピレニル基、6-メチル-1-ピレニル基、6-エチル-1-ピレニル基、6-n-ヘキシル-1-ピレニル基、6-n-オクチル-1-ピレニル基、6-n-デシル-1-ピレニル基、7-メチル-1-ピレニル基、7-エチル-1-ピレニル基、7-n-ヘキシル-1-ピレニル基、7-n-オクチル-1-ピレニル基、7-n-デシル-1-ピレニル基、8-メチル-1-ピレニル基、8-エチル-1-ピレニル基、8-n-ヘキシル-1-ピレニル基、8-オクチル-1-ピレニル基、8-n-デシル-1-ピレニル基、9-メチル-1-ピレニル基、9-エチル-1-ピレニル基、9-n-ヘキシル-1-ピレニル基、9-n-オクチル-1-ピレニル基、9-n-デシル-1-ピレニル基、10-メチル-1-ピレニル基、10-エチル-1-ピレニル基、10-n-ヘキシル-1-ピレニル基、10-n-オクチル-1-ピレニル基、10-n-デシル-1-ピレニル基、1-メチル-2-ピレニル基、1-エチル-2-ピレニル基、1-n-ヘキシル-2-ピレニル基、1-n-オクチル-2-ピレニル基、1-n-デシル-2-ピレニル基、3-メチル-2-ピレニル基、3-エチル-2-ピレニル基、3-n-ヘキシル-2-ピレニル基、3-n-オクチル-2-ピレニル基、3-n-デシル-2-ピレニル基、4-メチル-2-ピレニル

基、4-エチル-2-ピレニル基、4-n-ヘキシル-2-ピレニル基、4-n-オクチル-2-ピレニル基、4-n-デシル-2-ピレニル基、5-メチル-2-ピレニル基、5-エチル-2-ピレニル基、5-n-ヘキシル-2-ピレニル基、5-n-オクチル-2-ピレニル基、5-n-デシル-2-ピレニル基、6-メチル-2-ピレニル基、6-エチル-2-ピレニル基、6-n-ヘキシル-2-ピレニル基、6-n-オクチル-2-ピレニル基、6-n-デシル-2-ピレニル基、7-メチル-2-ピレニル基、7-エチル-2-ピレニル基、7-n-ヘキシル-2-ピレニル基、7-n-オクチル-2-ピレニル基、7-n-デシル-2-ピレニル基、8-メチル-2-ピレニル基、8-エチル-2-ピレニル基、8-n-ヘキシル-2-ピレニル基、8-オクチル-2-ピレニル基、8-n-デシル-2-ピレニル基、9-メチル-2-ピレニル基、9-エチル-2-ピレニル基、9-n-ヘキシル-2-ピレニル基、9-n-オクチル-2-ピレニル基、9-n-デシル-2-ピレニル基、10-メチル-2-ピレニル基、10-エチル-2-ピレニル基、10-n-ヘキシル-2-ピレニル基、10-n-オクチル-2-ピレニル基、10-n-デシル-2-ピレニル基、2-メトキシ-1-ピレニル基、2-メタノイル-1-ピレニル基、2-カルバモイル-1-ピレニル基、2-シアノ-1-ピレニル基、3-メトキシ-1-ピレニル基、3-メタノイル-1-ピレニル基、3-カルバモイル-1-ピレニル基、3-シアノ-1-ピレニル基、4-メトキシ-1-ピレニル基、4-メタノイル-1-ピレニル基、4-カルバモイル-1-ピレニル基、4-シアノ-1-ピレニル基、5-メトキシ-1-ピレニル基、5-メタノイル-1-ピレニル基、5-カルバモイル-1-ピレニル基、5-シアノ-1-ピレニル基、6-メトキシ-1-ピレニル基、6-メタノイル-1-ピレニル基、6-カルバモイル-1-ピレニル基、6-シアノ-1-ピレニル基、7-メトキシ-1-ピレニル基、7-メタノイル-1-ピレニル基、7-カルバモイル-1-ピレニル基、7-シアノ-1-ピレニル基、8-メトキシ-1-ピレニル基、8-メタノイル-1-ピレニル基、8-カルバモイル-1-ピレニル基、8-シアノ-1-ピレニル基、9-メトキシ-1-ピレニル基、9-メタノイル-1-ピレニル基、9-カルバモイル-1-ピレニル基、9-シアノ-1-ピレニル基、10-メトキシ-1-ピレニル基、10-メタノイル-1-ピレニル基、10-カルバモイル-1-ピレニル基、10-シアノ-1-ピレニル基、2-メトキシ-2-ピレニル基、2-メタノイル-2-ピレニル基、2-カルバモイル-2-ピレニル基、2-シアノ-2-ピレニル基、3-メトキシ-2-ピレニル基、3-メタノイル-2-ピレニル基、3-カルバモイル-2-ピレニル基、3-シアノ-2-ピレニル基

、4-メトキシ-2-ピレニル基、4-メタノイル-2-ピレニル基、4-カルバモイル-2-ピレニル基、4-シアノ-2-ピレニル基、5-メトキシ-2-ピレニル基、5-メタノイル-2-ピレニル基、5-カルバモイル-2-ピレニル基、5-シアノ-2-ピレニル基、6-メトキシ-2-ピレニル基、6-メタノイル-2-ピレニル基、6-カルバモイル-2-ピレニル基、6-シアノ-2-ピレニル基、7-メトキシ-2-ピレニル基、7-メタノイル-2-ピレニル基、7-カルバモイル-2-ピレニル基、7-シアノ-2-ピレニル基、8-メトキシ-2-ピレニル基、8-メタノイル-2-ピレニル基、8-カルバモイル-2-ピレニル基、8-シアノ-2-ピレニル基、9-メトキシ-2-ピレニル基、9-メタノイル-2-ピレニル基、9-カルバモイル-2-ピレニル基、9-シアノ-2-ピレニル基、10-メトキシ-2-ピレニル基、10-メタノイル-2-ピレニル基、10-カルバモイル-2-ピレニル基、10-シアノ-2-ピレニル基等が挙げられる。

[0029] 本発明の第1の局面において、ポリアミノピリジン類の具体例としては、ポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-フェニル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-3-ピリジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-ピリジル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-3-ピリジル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-4-ピリジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-ピリジル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-4-ピリジル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-2-ピリジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-メチル-3-ピリジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-4-ピリジル)アミノピリジン)等が挙げられる。

[0030] 本発明の第2の局面において、ポリアミノピリジン類の具体例としては、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)ア

ミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ナフチル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-ナフチル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ナフチル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-3-ナフチル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-キノリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-キノリル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-キノリル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-キノリル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-3-キノリル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-4-キノリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-5-メチル-2-ピリミジル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-1-ナフチル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-メチル-3-キノリル)アミノピリジン)等が挙げられる。

- [0031] 本発明の第3の局面において、ポリアミノピリジン類の具体例としては、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポ

リ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-9-アントリル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-メチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-エチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-n-プロピルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-n-ブチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-n-ヘキシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-n-オクチルピリジン)、ポリ(2-(N-2-ピレニル)アミノ-4-n-デシルピリジン)、ポリ(2-(N-2-メチル-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メチル-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-メチル-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メチル-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-メチル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-メチル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メチル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-メチル-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メチル-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-5-メチル-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-メチル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メチル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メチル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-5-メチル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-メトキシ-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-エトキシ-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メタノイル-1-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-エタノイル-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-カルバモイル-2-アントリル)アミノピリジン)、

ポリ(2-(N-4-シアノ-2-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-メトキシ-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-エトキシ-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-メタノイル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-エタノイル-9-アントリル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-2-カルバモイル-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-シアノ-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-メトキシ-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-5-エトキシ-1-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-1-メタノイル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-3-エタノイル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-4-カルバモイル-2-ピレニル)アミノピリジン)、ポリ(2-(N-5-シアノ-2-ピレニル)アミノピリジン)等が挙げられる。

[0032] 本発明のポリアミノピリジン類の数平均分子量は、500～1000000であり、好ましくは1000～100000である。ポリアミノピリジン類の数平均分子量が500未満の場合、得られた溶液をコーティングやキャストリングする際に成膜性が悪化するおそれがある。また、数平均分子量が1000000を超える場合、溶媒への溶解性が悪化するおそれがある。

[0033] 本発明のポリアミノピリジン類の製造方法としては、2, 6-ジハロゲノピリジン類と芳香族アミン化合物とを、パラジウム化合物およびホスフィン化合物を触媒とし、塩基の存在下、反応させる方法等が挙げられる。また、パラジウム化合物およびホスフィン化合物は、それらを含む混合触媒として反応に用いてもよい。

[0034] 前記2, 6-ジハロゲノピリジン類は、上記一般式(2)で表される化合物である。上記一般式(2)において、 R^1 は前記一般式(1)と同様である。また、Xはハロゲン原子を示す。

ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等が挙げられる。

[0035] 前記一般式(2)で表される2, 6-ジハロゲノピリジン類の具体例としては、2, 6-ジフルオロピリジン、2, 6-ジクロロピリジン、2, 6-ジブromopリジン、2, 6-ジヨードピリジン、3-メチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-メチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-メチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-エチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-エチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-エチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-イソプロピル-2, 6-ジクロロピリジン

ン、4-イソプロピル-2, 6-ジクロロピリジン、5-イソプロピル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-プロピル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-プロピル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-プロピル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-sec-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-sec-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-sec-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-tert-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-tert-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-tert-ブチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-ペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-ペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-ペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-イソペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-イソペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-イソペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-ネオペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-ネオペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-ネオペンチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-ヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-ヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-ヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、3-イソヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、4-イソヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、5-イソヘキシル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-オクチル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-オクチル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-オクチル-2, 6-ジクロロピリジン、3-n-デシル-2, 6-ジクロロピリジン、4-n-デシル-2, 6-ジクロロピリジン、5-n-デシル-2, 6-ジクロロピリジン、4-シアノ-2, 6-ジクロロピリジン、4-メトキシ-2, 6-ジクロロピリジン等が挙げられる。中でも、入手しやすく経済的である観点から2, 6-ジクロロピリジンおよび2, 6-ジプロモピリジンが好適に用いられる。

[0036] 一方、前記芳香族アミン化合物は、上記一般式(3)で表される化合物である。上記一般式(3)において、 R^2 は前記一般式(1)で定義したものと同様である。

[0037] 本発明の第1の局面において、前記一般式(3)で表される芳香族アミン化合物の具体例としては、アニリン、2-メチルアニリン、2-エチルアニリン、2-n-ヘキシルアニリン、2-n-オクチルアニリン、2-n-デシルアニリン、4-メチルアニリン、4-エチルアニリン、4-n-ヘキシルアニリン、4-n-オクチルアニリン、4-n-デシルアニリン、2-メトキシアニリン、2-メタノイルアニリン、2-カルバモイルアニリン、2-シアノアニリン、4-メトキシアニリン、4-メタノイルアニリン、4-カルバモイルアニリン、4-シアノアニ

リン、2-アミノピリジン、3-アミノピリジン、4-アミノピリジン、4-メチル-2-アミノピリジン、4-エチル-2-アミノピリジン、4-n-ヘキシル-2-アミノピリジン、4-n-オクチル-2-アミノピリジン、4-n-デシル-2-アミノピリジン、6-メチル-2-アミノピリジン、6-エチル-2-アミノピリジン、6-n-ヘキシル-2-アミノピリジン、6-n-オクチル-2-アミノピリジン、6-n-デシル-2-アミノピリジン、2-メチル-3-アミノピリジン、2-エチル-3-アミノピリジン、2-n-ヘキシル-3-アミノピリジン、2-n-オクチル-3-アミノピリジン、2-n-デシル-3-アミノピリジン、4-メチル-3-アミノピリジン、4-エチル-3-アミノピリジン、4-n-ヘキシル-3-アミノピリジン、4-n-オクチル-3-アミノピリジン、4-n-デシル-3-アミノピリジン、6-メチル-3-アミノピリジン、6-エチル-3-アミノピリジン、6-n-ヘキシル-3-アミノピリジン、6-n-オクチル-3-アミノピリジン、6-n-デシル-3-アミノピリジン、2-メチル-4-アミノピリジン、2-エチル-4-アミノピリジン、2-n-ヘキシル-4-アミノピリジン、2-n-オクチル-4-アミノピリジン、2-n-デシル-4-アミノピリジン、6-メチル-4-アミノピリジン、6-エチル-4-アミノピリジン、6-n-ヘキシル-4-アミノピリジン、6-n-オクチル-4-アミノピリジン、6-n-デシル-4-アミノピリジン、4-メトキシ-2-アミノピリジン、4-メタノイル-2-アミノピリジン、4-カルバモイル-2-アミノピリジン、2-シアノ-2-アミノピリジン、6-メトキシ-2-アミノピリジン、6-メタノイル-2-アミノピリジン、6-カルバモイル-2-アミノピリジン、6-シアノ-2-アミノピリジン、2-メトキシ-3-アミノピリジン、2-メタノイル-3-アミノピリジン、2-カルバモイル-3-アミノピリジン、2-シアノ-3-アミノピリジン、4-メトキシ-3-アミノピリジン、4-メタノイル-3-アミノピリジン、4-カルバモイル-3-アミノピリジン、4-シアノ-3-アミノピリジン、6-メトキシ-3-アミノピリジン、6-メタノイル-3-アミノピリジン、6-カルバモイル-3-アミノピリジン、6-シアノ-3-アミノピリジン、2-メトキシ-4-アミノピリジン、2-メタノイル-4-アミノピリジン、2-カルバモイル-4-アミノピリジン、2-シアノ-4-アミノピリジン、6-メトキシ-4-アミノピリジン、6-メタノイル-4-アミノピリジン、6-カルバモイル-4-アミノピリジン、6-シアノ-4-アミノピリジン等が挙げられる。中でも、入手しやすく経済的である観点からアニリン、2-アミノピリジン、3-アミノピリジン、4-アミノピリジンが好適に用いられる。

[0038] 本発明の第2の局面において、前記一般式(3)で表される芳香族アミン化合物の

具体例としては、2-アミノピリミジン、4-アミノピリミジン、5-アミノピリミジン、4-メチル-2-アミノピリミジン、4-エチル-2-アミノピリミジン、4-n-ヘキシル-2-アミノピリミジン、4-n-オクチル-2-アミノピリミジン、4-n-デシル-2-アミノピリミジン、5-メチル-2-アミノピリミジン、5-エチル-2-アミノピリミジン、5-n-ヘキシル-2-アミノピリミジン、5-n-オクチル-2-アミノピリミジン、5-n-デシル-2-アミノピリミジン、4-メトキシ-2-アミノピリミジン、4-メタノイル-2-アミノピリミジン、4-カルバモイル-2-アミノピリミジン、4-シアノ-2-アミノピリミジン、5-メトキシ-2-アミノピリミジン、5-メタノイル-2-アミノピリミジン、5-カルバモイル-2-アミノピリミジン、5-シアノ-2-アミノピリミジン、1-アミノナフタレン、2-アミノナフタレン、2-メチル-1-アミノナフタレン、2-エチル-1-アミノナフタレン、2-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、2-n-オクチル-1-アミノナフタレン、2-n-デシル-1-アミノナフタレン、3-メチル-1-アミノナフタレン、3-エチル-1-アミノナフタレン、3-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、3-n-オクチル-1-アミノナフタレン、3-n-デシル-1-アミノナフタレン、4-メチル-1-アミノナフタレン、4-エチル-1-アミノナフタレン、4-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、4-n-オクチル-1-アミノナフタレン、4-n-デシル-1-アミノナフタレン、5-メチル-1-アミノナフタレン、5-エチル-1-アミノナフタレン、5-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、5-n-オクチル-1-アミノナフタレン、5-n-デシル-1-アミノナフタレン、6-メチル-1-アミノナフタレン、6-エチル-1-アミノナフタレン、6-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、6-n-オクチル-1-アミノナフタレン、6-n-デシル-1-アミノナフタレン、7-メチル-1-アミノナフタレン、7-エチル-1-アミノナフタレン、7-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、7-n-オクチル-1-アミノナフタレン、7-n-デシル-1-アミノナフタレン、8-メチル-1-アミノナフタレン、8-エチル-1-アミノナフタレン、8-n-ヘキシル-1-アミノナフタレン、8-n-オクチル-1-アミノナフタレン、8-n-デシル-1-アミノナフタレン、4-メトキシ-1-アミノナフタレン、4-メタノイル-1-アミノナフタレン、4-カルバモイル-1-アミノナフタレン、4-シアノ-1-アミノナフタレン、2-アミノ-1-キノリン、3-アミノ-1-キノリン、4-アミノ-1-キノリン、5-アミノ-1-キノリン、6-アミノ-1-キノリン、7-アミノ-1-キノリン、8-アミノ-1-キノリン、2-アミノ-3-メチル-1-キノリン、2-アミノ-3-エチル-1-キノリン、2-アミノ-3-n-ヘキシル-1-キノリン、2-アミノ-3-n-オク

チル-1-キノリン、2-アミノ-3-n-デシル-1-キノリン等が挙げられる。中でも、入手しやすく経済的である観点から2-アミノピリミジン、1-ナフチルアミン、3-アミノキノリンが好適に用いられる。

- [0039] 本発明の第3の局面において、前記一般式(3)で表される芳香族アミン化合物の具体例としては、1-アミノアントラセン、2-アミノアントラセン、9-アミノアントラセン、2-メチル-1-アミノアントラセン、2-エチル-1-アミノアントラセン、2-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、2-n-オクチル-1-アミノアントラセン、2-n-デシル-1-アミノアントラセン、3-メチル-1-アミノアントラセン、3-エチル-1-アミノアントラセン、3-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、3-n-オクチル-1-アミノアントラセン、3-n-デシル-1-アミノアントラセン、4-メチル-1-アミノアントラセン、4-エチル-1-アミノアントラセン、4-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、4-n-オクチル-1-アミノアントラセン、4-n-デシル-1-アミノアントラセン、5-メチル-1-アミノアントラセン、5-エチル-1-アミノアントラセン、5-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、5-n-オクチル-1-アミノアントラセン、5-n-デシル-1-アミノアントラセン、6-メチル-1-アミノアントラセン、6-エチル-1-アミノアントラセン、6-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、6-n-オクチル-1-アミノアントラセン、6-n-デシル-1-アミノアントラセン、7-メチル-1-アミノアントラセン、7-エチル-1-アミノアントラセン、7-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、7-n-オクチル-1-アミノアントラセン、7-n-デシル-1-アミノアントラセン、8-メチル-1-アミノアントラセン、8-エチル-1-アミノアントラセン、8-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、8-n-オクチル-1-アミノアントラセン、8-n-デシル-1-アミノアントラセン、9-メチル-1-アミノアントラセン、9-エチル-1-アミノアントラセン、9-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、9-n-オクチル-1-アミノアントラセン、9-n-デシル-1-アミノアントラセン、10-メチル-1-アミノアントラセン、10-エチル-1-アミノアントラセン、10-n-ヘキシル-1-アミノアントラセン、10-n-オクチル-1-アミノアントラセン、10-n-デシル-1-アミノアントラセン、1-メチル-2-アミノアントラセン、1-エチル-2-アミノアントラセン、1-n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、1-n-オクチル-2-アミノアントラセン、1-n-デシル-2-アミノアントラセン、3-メチル-2-アミノアントラセン、3-エチル-2-アミノアントラセン、3-n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、3-n

-オクチル-2-アミノアントラセン、3-n-デシル-2-アミノアントラセン、4-メチル-2-
 -アミノアントラセン、4-エチル-2-アミノアントラセン、4-n-ヘキシル-2-アミノアン
 トラセン、4-n-オクチル-2-アミノアントラセン、4-n-デシル-2-アミノアントラセン、
 5-メチル-2-アミノアントラセン、5-エチル-2-アミノアントラセン、5-n-ヘキシル-
 2-アミノアントラセン、5-n-オクチル-2-アミノアントラセン、5-n-デシル-2-アミノ
 アントラセン、6-メチル-2-アミノアントラセン、6-エチル-2-アミノアントラセン、6-
 n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、6-n-オクチル-2-アミノアントラセン、6-n-デ
 シル-2-アミノアントラセン、7-メチル-2-アミノアントラセン、7-エチル-2-アミノア
 ントラセン、7-n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、7-n-オクチル-2-アミノアントラ
 セン、7-n-デシル-2-アミノアントラセン、8-メチル-2-アミノアントラセン、8-エチ
 ル-2-アミノアントラセン、8-n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、8-n-オクチル-2-
 アミノアントラセン、8-n-デシル-2-アミノアントラセン、9-メチル-2-アミノアントラ
 セン、9-エチル-2-アミノアントラセン、9-n-ヘキシル-2-アミノアントラセン、9-n
 -オクチル-2-アミノアントラセン、9-n-デシル-2-アミノアントラセン、10-メチル-
 2-アミノアントラセン、10-エチル-2-アミノアントラセン、10-n-ヘキシル-2-アミノ
 アントラセン、10-n-オクチル-2-アミノアントラセン、10-n-デシル-2-アミノアント
 ラセン、1-メチル-9-アミノアントラセン、1-エチル-9-アミノアントラセン、1-n-ヘ
 キシル-9-アミノアントラセン、1-n-オクチル-9-アミノアントラセン、1-n-デシル-
 9-アミノアントラセン、2-メチル-9-アミノアントラセン、2-エチル-9-アミノアントラ
 セン、2-n-ヘキシル-9-アミノアントラセン、2-n-オクチル-9-アミノアントラセン、
 2-n-デシル-9-アミノアントラセン、3-メチル-9-アミノアントラセン、3-エチル-9-
 アミノアントラセン、3-n-ヘキシル-9-アミノアントラセン、3-n-オクチル-9-アミノ
 アントラセン、3-n-デシル-9-アミノアントラセン、4-メチル-9-アミノアントラセン、
 4-エチル-9-アミノアントラセン、4-n-ヘキシル-9-アミノアントラセン、4-n-オク
 チル-9-アミノアントラセン、4-n-デシル-9-アミノアントラセン、10-メチル-9-アミ
 ノアントラセン、10-エチル-9-アミノアントラセン、10-n-ヘキシル-9-アミノアント
 ラセン、10-n-オクチル-9-アミノアントラセン、10-n-デシル-9-アミノアントラセン
 、2-メトキシ-1-アミノアントラセン、2-メタノイル-1-アミノアントラセン、2-カルバモ

イルー1-アミノアントラセン、2-シアノ-1-アミノアントラセン、3-メトキシ-1-アミノ
ントラセン、3-メタノイル-1-アミノアントラセン、3-カルバモイル-1-アミノアントラセ
ン、3-シアノ-1-アミノアントラセン、4-メトキシ-1-アミノアントラセン、4-メタノイル
1-アミノアントラセン、4-カルバモイル-1-アミノアントラセン、4-シアノ-1-アミノア
ントラセン、5-メトキシ-1-アミノアントラセン、5-メタノイル-1-アミノアントラセン、5-
カルバモイル-1-アミノアントラセン、5-シアノ-1-アミノアントラセン、6-メトキシ-1
-アミノアントラセン、6-メタノイル-1-アミノアントラセン、6-カルバモイル-1-アミノ
アントラセン、6-シアノ-1-アミノアントラセン、7-メトキシ-1-アミノアントラセン、7-
メタノイル-1-アミノアントラセン、7-カルバモイル-1-アミノアントラセン、7-シアノ
1-アミノアントラセン、8-メトキシ-1-アミノアントラセン、8-メタノイル-1-アミノアン
トラセン、8-カルバモイル-1-アミノアントラセン、8-シアノ-1-アミノアントラセン、9-
メトキシ-1-アミノアントラセン、9-メタノイル-1-アミノアントラセン、9-カルバモイ
ル-1-アミノアントラセン、9-シアノ-1-アミノアントラセン、10-メトキシ-1-アミノアン
トラセン、10-メタノイル-1-アミノアントラセン、10-カルバモイル-1-アミノアントラセ
ン、10-シアノ-1-アミノアントラセン、1-メトキシ-2-アミノアントラセン、1-メタノイ
ル-2-アミノアントラセン、1-カルバモイル-2-アミノアントラセン、1-シアノ-2-アミ
ノアントラセン、3-メトキシ-2-アミノアントラセン、3-メタノイル-2-アミノアントラセン、
3-カルバモイル-2-アミノアントラセン、3-シアノ-2-アミノアントラセン、4-メトキシ
-2-アミノアントラセン、4-メタノイル-2-アミノアントラセン、4-カルバモイル-2-アミ
ノアントラセン、4-シアノ-2-アミノアントラセン、5-メトキシ-2-アミノアントラセン、5
-メタノイル-2-アミノアントラセン、5-カルバモイル-2-アミノアントラセン、5-シアノ
-2-アミノアントラセン、6-メトキシ-2-アミノアントラセン、6-メタノイル-2-アミノアン
トラセン、6-カルバモイル-2-アミノアントラセン、6-シアノ-2-アミノアントラセン、7
-メトキシ-2-アミノアントラセン、7-メタノイル-2-アミノアントラセン、7-カルバモイ
ル-2-アミノアントラセン、7-シアノ-2-アミノアントラセン、8-メトキシ-2-アミノアン
トラセン、8-メタノイル-2-アミノアントラセン、8-カルバモイル-2-アミノアントラセン
、8-シアノ-2-アミノアントラセン、9-メトキシ-2-アミノアントラセン、9-メタノイル-2
-アミノアントラセン、9-カルバモイル-2-アミノアントラセン、9-シアノ-2-アミノアン

トラセン、10-メトキシ-2-アミノアントラセン、10-メタノイル-2-アミノアントラセン、10-カルバモイル-2-アミノアントラセン、10-シアノ-2-アミノアントラセン、1-メトキシ-9-アミノアントラセン、1-メタノイル-9-アミノアントラセン、1-カルバモイル-9-アミノアントラセン、1-シアノ-9-アミノアントラセン、2-メトキシ-9-アミノアントラセン、2-メタノイル-9-アミノアントラセン、2-カルバモイル-9-アミノアントラセン、2-シアノ-9-アミノアントラセン、3-メトキシ-9-アミノアントラセン、3-メタノイル-9-アミノアントラセン、3-カルバモイル-9-アミノアントラセン、3-シアノ-9-アミノアントラセン、4-メトキシ-9-アミノアントラセン、4-メタノイル-9-アミノアントラセン、4-カルバモイル-9-アミノアントラセン、4-シアノ-9-アミノアントラセン、10-メトキシ-9-アミノアントラセン、10-メタノイル-9-アミノアントラセン、10-カルバモイル-9-アミノアントラセン、10-シアノ-9-アミノアントラセン、1-アミノピレン、2-アミノピレン、2-メチル-1-アミノピレン、2-エチル-1-アミノピレン、2-n-ヘキシル-1-アミノピレン、2-n-オクチル-1-アミノピレン、2-n-デシル-1-アミノピレン、3-メチル-1-アミノピレン、3-エチル-1-アミノピレン、3-n-ヘキシル-1-アミノピレン、3-n-オクチル-1-アミノピレン、3-n-デシル-1-アミノピレン、4-メチル-1-アミノピレン、4-エチル-1-アミノピレン、4-n-ヘキシル-1-アミノピレン、4-n-オクチル-1-アミノピレン、4-n-デシル-1-アミノピレン、5-メチル-1-アミノピレン、5-エチル-1-アミノピレン、5-n-ヘキシル-1-アミノピレン、5-n-オクチル-1-アミノピレン、5-n-デシル-1-アミノピレン、6-メチル-1-アミノピレン、6-エチル-1-アミノピレン、6-n-ヘキシル-1-アミノピレン、6-n-オクチル-1-アミノピレン、6-n-デシル-1-アミノピレン、7-メチル-1-アミノピレン、7-エチル-1-アミノピレン、7-n-ヘキシル-1-アミノピレン、7-n-オクチル-1-アミノピレン、7-n-デシル-1-アミノピレン、8-メチル-1-アミノピレン、8-エチル-1-アミノピレン、8-n-ヘキシル-1-アミノピレン、8-オクチル-1-アミノピレン、8-n-デシル-1-アミノピレン、9-メチル-1-アミノピレン、9-エチル-1-アミノピレン、9-n-ヘキシル-1-アミノピレン、9-n-オクチル-1-アミノピレン、9-n-デシル-1-アミノピレン、10-メチル-1-アミノピレン、10-エチル-1-アミノピレン、10-n-ヘキシル-1-アミノピレン、10-n-オクチル-1-アミノピレン、10-n-デシル-1-アミノピレン、1-メチル-2-アミノピレン、1-エチル-2-アミノピレン、1-n

ーヘキシルー2ーアミノピレン、1ーnーオクチルー2ーアミノピレン、1ーnーデシルー2ーアミノピレン、3ーメチルー2ーアミノピレン、3ーエチルー2ーアミノピレン、3ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、3ーnーオクチルー2ーアミノピレン、3ーnーデシルー2ーアミノピレン、4ーメチルー2ーアミノピレン、4ーエチルー2ーアミノピレン、4ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、4ーnーオクチルー2ーアミノピレン、4ーnーデシルー2ーアミノピレン、5ーメチルー2ーアミノピレン、5ーエチルー2ーアミノピレン、5ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、5ーnーオクチルー2ーアミノピレン、5ーnーデシルー2ーアミノピレン、6ーメチルー2ーアミノピレン、6ーエチルー2ーアミノピレン、6ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、6ーnーオクチルー2ーアミノピレン、6ーnーデシルー2ーアミノピレン、7ーメチルー2ーアミノピレン、7ーエチルー2ーアミノピレン、7ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、7ーnーオクチルー2ーアミノピレン、7ーnーデシルー2ーアミノピレン、8ーメチルー2ーアミノピレン、8ーエチルー2ーアミノピレン、8ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、8ーオクチルー2ーアミノピレン、8ーnーデシルー2ーアミノピレン、9ーメチルー2ーアミノピレン、9ーエチルー2ーアミノピレン、9ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、9ーnーオクチルー2ーアミノピレン、9ーnーデシルー2ーアミノピレン、10ーメチルー2ーアミノピレン、10ーエチルー2ーアミノピレン、10ーnーヘキシルー2ーアミノピレン、10ーnーオクチルー2ーアミノピレン、10ーnーデシルー2ーアミノピレン、2ーメトキシー1ーアミノピレン、2ーメタノイルー1ーアミノピレン、2ーカルバモイルー1ーアミノピレン、2ーシアノー1ーアミノピレン、3ーメトキシー1ーアミノピレン、3ーメタノイルー1ーアミノピレン、3ーカルバモイルー1ーアミノピレン、3ーシアノー1ーアミノピレン、4ーメトキシー1ーアミノピレン、4ーメタノイルー1ーアミノピレン、4ーカルバモイルー1ーアミノピレン、4ーシアノー1ーアミノピレン、5ーメトキシー1ーアミノピレン、5ーメタノイルー1ーアミノピレン、5ーカルバモイルー1ーアミノピレン、5ーシアノー1ーアミノピレン、6ーメトキシー1ーアミノピレン、6ーメタノイルー1ーアミノピレン、6ーカルバモイルー1ーアミノピレン、6ーシアノー1ーアミノピレン、7ーメトキシー1ーアミノピレン、7ーメタノイルー1ーアミノピレン、7ーカルバモイルー1ーアミノピレン、7ーシアノー1ーアミノピレン、8ーメトキシー1ーアミノピレン、8ーメタノイルー1ーアミノピレン、8ーカルバモイルー1ーアミノピレン、8ーシアノー1ーアミノピレン、9ーメトキシー1ーアミノピレン、9ーメタノイルー1ーアミノピレン、9ーカルバモイルー1ーアミノピレン、9ーシアノー1ーアミノピレン、10ーメトキシー1ーアミノピレン、10ーメタノ

イル-1-アミノピレン、10-カルバモイル-1-アミノピレン、10-シアノ-1-アミノピレン、2-メトキシ-2-アミノピレン、2-メタノイル-2-アミノピレン、2-カルバモイル-2-アミノピレン、2-シアノ-2-アミノピレン、3-メトキシ-2-アミノピレン、3-メタノイル-2-アミノピレン、3-カルバモイル-2-アミノピレン、3-シアノ-2-アミノピレン、4-メトキシ-2-アミノピレン、4-メタノイル-2-アミノピレン、4-カルバモイル-2-アミノピレン、4-シアノ-2-アミノピレン、5-メトキシ-2-アミノピレン、5-メタノイル-2-アミノピレン、5-カルバモイル-2-アミノピレン、5-シアノ-2-アミノピレン、6-メトキシ-2-アミノピレン、6-メタノイル-2-アミノピレン、6-カルバモイル-2-アミノピレン、6-シアノ-2-アミノピレン、7-メトキシ-2-アミノピレン、7-メタノイル-2-アミノピレン、7-カルバモイル-2-アミノピレン、7-シアノ-2-アミノピレン、8-メトキシ-2-アミノピレン、8-メタノイル-2-アミノピレン、8-カルバモイル-2-アミノピレン、8-シアノ-2-アミノピレン、9-メトキシ-2-アミノピレン、9-メタノイル-2-アミノピレン、9-カルバモイル-2-アミノピレン、9-シアノ-2-アミノピレン、10-メトキシ-2-アミノピレン、10-メタノイル-2-アミノピレン、10-カルバモイル-2-アミノピレン、10-シアノ-2-アミノピレン等が挙げられる。中でも、入手しやすく経済的である観点から1-アミノアントラセン、2-アミノアントラセン、1-アミノピレン、2-アミノピレンが好適に用いられる。

[0040] 芳香族アミン化合物の使用量は、2, 6-ジハロゲノピリジン類1モルに対して0.5〜1.5モル、好ましくは0.9〜1.1モルであることが望ましい。芳香族アミン化合物の使用量が0.5モル未満の場合、反応が進行しにくくなるおそれがある。また、芳香族アミン化合物の使用量が1.5モルを超える場合、使用量に見合う効果がなく経済的でない。

[0041] また、本発明で用いられるパラジウム化合物としては、例えば、ヘキサクロロパラジウム(IV)酸ナトリウム四水和物、ヘキサクロロパラジウム(IV)酸カリウム等の4価のパラジウム化合物；塩化パラジウム(II)、臭化パラジウム(II)、酢酸パラジウム(II)、パラジウムアセチルアセトナート(II)、ジクロロビス(ベンゾニトリル)パラジウム(II)、ジクロロビス(アセトニトリル)パラジウム(II)、ジクロロビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)、ジクロロビス(トリ-*o*-トリルホスフィン)パラジウム(II)、ジクロロテトラアンミンパラジウム(II)、ジクロロ(シクロオクター-1, 5-ジエン)パラジウム(II)、パラジウムトリフル

オロアセテート(II)等の2価パラジウム化合物;トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウムクロロホルム錯体(0)、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(0)等の0価パラジウム化合物等が挙げられる。中でも、高い反応活性を有する観点から0価パラジウム化合物が好ましい。この中でも、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)が最も反応活性が高く好適に用いられる。

[0042] パラジウム化合物の使用量は、2, 6-ジハロゲンピリジン類に対して、パラジウム換算で0.01〜20モル%、好ましくは0.02〜5モル%であることが望ましい。パラジウム化合物の使用量が0.01モル%未満の場合、反応が進行しにくくなるおそれがある。また、パラジウム化合物の使用量が20モル%を超える場合、使用量に見合う効果がなく経済的でなくなるおそれがある。

[0043] 一方、本発明で用いられるホスフィン化合物としては、例えば、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル、1, 1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン、N, N'-ジメチル-1-[1', 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセニル]等の2座配位子としてのキレート能を有するホスフィン化合物が挙げられる。中でも、高い反応活性を有する観点から2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチルが好適に用いられる。

[0044] ホスフィン化合物の使用量は、パラジウム化合物1モルに対して0.1〜10モル、好ましくは0.5〜5モルであることが望ましい。ホスフィン化合物の使用量が0.1モル未満の場合、反応が進行しにくくなるおそれがある。また、ホスフィン化合物の使用量が10モルを超える場合、使用量に見合う効果がなく経済的でない。

[0045] 上記パラジウム化合物と上記ホスフィン化合物は、反応系にそれぞれ単独に加えても、予め錯体の形に調製して混合触媒として添加してもよい。

[0046] 本発明で用いられる塩基としては、例えば、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウムメトキシド、カリウムエトキシド、リチウム-tert-ブトキシド、ナトリウム-tert-ブトキシド、カリウム-tert-ブトキシド等のアルカリ金属アルコキシド等が挙げられる。なお、これら塩基は、アルカリ金属、水素化アルカリ金属および水酸化アルカリ金属とアルコールから調製して反応系に添加してもよい。

- [0047] 塩基の使用量は、2, 6-ジハロゲンピリジン類1モルに対して、2モル以上、好ましくは2〜10モルであることが望ましい。塩基の使用量が2モル未満の場合、収率が低下するおそれがある。
- [0048] 本発明において、反応は不活性溶媒中で行われる。不活性溶媒としては、例えば、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル系溶媒；アセトニトリル、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホトリアミド等が挙げられる。中でも、溶媒のリサイクルが容易であることから、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶媒が好適に用いられる。
- [0049] 反応温度は20〜250℃、好ましくは50〜150℃であることが望ましい。反応温度が20℃より低い場合、反応に長時間を要するおそれがある。また、反応温度が250℃より高い場合、副反応が起こり、収率が低下するおそれがある。反応時間は、反応温度により異なるが、通常1〜20時間である。
- [0050] かくして得られたポリアミノピリジン類は、例えば、アンモニア水／メタノールの混合溶媒等を添加してポリアミノピリジン類を析出させ、ろ過、洗浄して触媒等を除去後、乾燥することにより単離することができる。

実施例

- [0051] 以下に、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。なお、実施例で得られたポリアミノピリジン類の数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（東ソー株式会社、商品名；HLC-8020）を用いて、LiBr（0.01mol/L）を含むN, N-ジメチルホルムアミド中30℃にて測定し、標準ポリスチレンを基準にして算出した。

[0052] 実施例1

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g（86.7ミリモル）、アニリン8.06g（86.7ミリモル）、トリス（ジベンジリデンアセトン）ニパラジウム（0）1.98g（2.16ミリモル）、2, 2'-ビス（ジフェニルホスフィノ）-1, 1'-ビナフチル4.05g（6.50ミリモル）、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g（260.1ミリモル）およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇

温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉体のポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)14.49gを得た(収率99.5%)。また、得られたポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)の数平均分子量は4500であった。

[0053] 得られたポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr): 3058, 1568, 1494, 1415, 1351, 1261, 1157, 1072, 778, 730, 695(cm^{-1})

元素分析(重量%)

理論値 C:77.9 H:4.8 N:16.5 Cl:0.8

測定値 C:78.6 H:4.7 N:16.0 Cl:0.7

[0054] 実施例2

実施例1において、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)の量を0.99g(1.08ミリモル)、2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1,1'-ビナフチルの量を2.03g(3.25ミリモル)に変更した以外は、実施例1と同様にしてポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)12.65gを得た(収率86.9%)。また、得られたポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)の数平均分子量は5500であった。

[0055] 実施例3

実施例1において、2,6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)に代えて2,6-ジブromoピリジン20.55g(86.7ミリモル)を用いた以外は、実施例1と同様にしてポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)14.56gを得た(収率100%)。また、得られたポリ(2-(N-フェニル)アミノピリジン)の数平均分子量は6500であった。

[0056] 実施例4

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2,6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、2-アミノピリジン8.16g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデン

アセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2,2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1,1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉末のポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)13.25gを得た(収率90.4%)。また、得られたポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)の数平均分子量は3500であった。

[0057] 得られたポリ(2-(N-2-ピリジル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr):1645、1597、1557、1434、865、701(cm^{-1})

元素分析(重量%)

理論値 C:70.3 H:4.1 N:24.6 Cl:1.0

測定値 C:71.0 H:4.5 N:23.4 Cl:1.1

[0058] 比較例1(特許文献1の方法)

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2-アミノピリジン15.06g(160ミリモル)、塩化鉄(FeCl_3)8.11g(50ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で6時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、ろ過して粗ポリアミノピリジンを得た。得られた粗ポリアミノピリジンを28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、黄土色粉末のポリアミノピリジン12.60gを得た(収率83.67%)。なお、得られたポリマーは、N,N-ジメチルホルムアミドには溶解しなかったため、GPCにより数平均分子量を測定することができなかった。

[0059] 評価

実施例1〜4および比較例1で得られたポリアミノピリジン類の各種溶媒に対する溶解性を評価した。テトラヒドロフラン、トルエン、キシレン、ジクロロメタンおよび水にそれぞれ樹脂濃度が1重量%となるように溶解し、溶液の状態を目視で観察した。なお、完全に溶解する場合を○、不完全にする場合を△、全く溶解しない場合を×と評価した。

[0060] [表1]

| | 溶 媒 | | | | |
|-------|---------------|------|------|-------------|---|
| | テトラヒドロ フラン | トルエン | キシレン | ジクロロメタ ン | 水 |
| 実施例 1 | ○ | ○ | ○ | ○ | × |
| 実施例 2 | ○ | ○ | ○ | ○ | × |
| 実施例 3 | ○ | ○ | ○ | ○ | × |
| 実施例 4 | △ | △ | △ | △ | ○ |
| 比較例 1 | × | × | × | × | × |

[0061] 表1より、実施例1〜3で得られたポリアミノピリジン類は、種々の有機溶媒に溶解することがわかる。また、実施例4で得られたポリアミノピリジン類は、水に溶解することがわかる。これに対し、従来法によるポリアミノピリジンは試験したいずれの溶媒に対しても溶解性が劣っていた。

[0062] 実施例5

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、2-アミノピリミジン8.25g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉体のポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)14.68gを得た(収率99.5%)。また、得られたポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)の数平均分子量は450

0であった。

- [0063] 得られたポリ(2-(N-2-ピリミジル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr): 3400、1422、1149、878、776、701(cm^{-1})

[0064] 実施例6

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、1-アミノナフタレン12.42g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉体のポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)17.22gを得た(収率91.0%)。また、得られたポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)の数平均分子量は5500であった。

- [0065] 得られたポリ(2-(N-1-ナフチル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr): 3400、1573、1502、1417、1291、1248、1151、774、720(cm^{-1})

[0066] 実施例7

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、3-アミノキノリン12.50g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、

反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉体のポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)10.26gを得た(収率54.0%)。また、得られたポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)の数平均分子量は5400であった。

[0067] 得られたポリ(2-(N-3-キノリル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr):3400、1573、1500、1417、1292、1248、1151、774、720(cm^{-1})

[0068] 評価

実施例5〜7で得られたポリアミノピリジン類の各種溶媒に対する溶解性を評価した。テトラヒドロフラン、N,N-ジメチルホルムアミド、トルエンおよびメタノールにそれぞれ樹脂濃度が1重量%となるように溶解し、溶液の状態を目視で観察した。なお、完全に溶解する場合を○、不完全にする場合を△、全く溶解しない場合を×と評価した。結果を表2に示した。

[0069] [表2]

| | 溶 媒 | | | |
|-------|-----------|-----------------|------|-------|
| | テトラヒドロフラン | N, N-ジメチルホルムアミド | トルエン | メタノール |
| 実施例 5 | △ | △ | △ | ○ |
| 実施例 6 | ○ | ○ | ○ | × |
| 実施例 7 | ○ | ○ | ○ | × |

[0070] また、実施例5〜7で得られたポリアミノピリジン類の電子の最高被占軌道(HOMO)のエネルギー準位、電子の最低空軌道(LUMO)のエネルギー準位およびエネルギー準位の差(バンドギャップエネルギー)を、サイクリックボルタンメトリー(CV)法により測定した。具体的には、ポリアミノピリジン類のDMF溶液を白金電極上にキャストし、80℃、1時間減圧乾燥して溶媒を除去し、電極上にフィルムを形成させた。この電極を用いて、電気化学アナライザー(BAS株式会社、商品名 ALSモデル600B電気化学アナライザー)により、アセトニトリル中、テトラブチルアンモニウムテトラフル

オロボレートを電解基質とし(0.1mol/L)、参照電極をAg/Ag⁺として、走査速度50mV/秒、25℃にてCV曲線を測定し、その酸化電位および還元電位より算出した。結果を表3に示す。

[0071] [表3]

| | H O M O | L U M O | バンドギャップ エネルギー |
|-------|---------|---------|------------------|
| | [e V] | [e V] | [e V] |
| 実施例 5 | 5 . 2 | 2 . 7 | 2 . 5 |
| 実施例 6 | 5 . 3 | 2 . 8 | 2 . 5 |
| 実施例 7 | 5 . 5 | 2 . 6 | 2 . 9 |

[0072] 表2より、実施例5〜7で得られたポリアミノピリジン類は、種々の溶媒に溶解することがわかる。表3より、実施例5〜7で得られたポリアミノピリジン類は、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料に好適なエネルギー準位を有していることがわかる。

[0073] 実施例8

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、1-アミノアントラセン16.76g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、黄褐色粉体のポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)22.97gを得た(収率99.5%)。また、得られたポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)の数平均分子量は4530であった。

[0074] 得られたポリ(2-(N-1-アントリル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr):1157、1417、1395、1351、1260、1165、1142、879、779、732(c

m⁻¹)

[0075] 実施例9

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、2-アミノアントラセン16.76g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、黄褐色粉末のポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)22.88gを得た(収率99.1%)。また、得られたポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)の数平均分子量は5800であった。

[0076] 得られたポリ(2-(N-2-アントリル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr): 1590, 1558, 1416, 1342, 1276, 1239, 1155, 890, 737(cm⁻¹)

[0077] 実施例10

冷却管、温度計を備え付けた1L容の四つ口フラスコに、2, 6-ジクロロピリジン12.83g(86.7ミリモル)、1-アミノピレン18.84g(86.7ミリモル)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ニパラジウム(0)1.98g(2.16ミリモル)、2, 2'-ビス(ジフェニルホスフィノ)-1, 1'-ビナフチル4.05g(6.50ミリモル)、ナトリウム-tert-ブトキシド25.00g(260.1ミリモル)およびトルエン800mLを仕込んだ。次いで、窒素雰囲気下で100℃まで昇温し、100℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液を室温まで冷却し、反応液を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶媒2L(容積比1/4)に添加して、析出物をろ別して粗ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)を得た。得られた粗ポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)を28重量%アンモニア水/メタノール混合溶

媒0.5L(容積比1/4)で洗浄し、さらにメタノールで洗浄した後、減圧乾燥して、茶褐色粉体のポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)25.04gを得た(収率99.5%)。また、得られたポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)の数平均分子量は5400であった。

[0078] 得られたポリ(2-(N-1-ピレニル)アミノピリジン)は、下記の物性を有することから同定することができた。

IR(KBr):1581、1506、1415、1346、1262、1160、843、782(cm^{-1})

[0079] 評価

実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類の各種溶媒に対する溶解性を評価した。1-メチル-2-ピロリドン、N, N-ジメチルホルムアミド、クロロホルムおよびジクロロメタンにそれぞれ樹脂濃度が1重量%となるように溶解し、溶液の状態を目視で観察した。なお、完全に溶解する場合を○、不完全にする場合を△、全く溶解しない場合を×と評価した。結果を表4に示した。

[0080] [表4]

| | 溶 媒 | | | |
|--------|-------------------|---------------------|--------|---------|
| | 1-メチル-2- ピロリドン | N, N-ジメチル ホルムアミド | クロロホルム | ジクロロメタン |
| 実施例 8 | ○ | △ | ○ | ○ |
| 実施例 9 | ○ | △ | ○ | ○ |
| 実施例 10 | ○ | △ | ○ | ○ |

[0081] 実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類の電子の最高被占軌道(HOMO)のエネルギー準位、電子の最低空軌道(LUMO)のエネルギー準位およびエネルギー準位の差(バンドギャップエネルギー)を、サイクリックボルタンメトリー(CV)法により測定した。

[0082] 具体的には、ポリアミノピリジン類のDMF溶液を白金電極上にキャストし、80℃、1時間減圧乾燥して溶媒を除去し、電極上にフィルムを形成させた。この電極を用いて、電気化学アナライザー(BAS株式会社、商品名 ALSモデル600B電気化学アナライザー)により、アセトニトリル中、テトラブチルアンモニウムテトラフルオロボレーートを電解基質とし(0.1mol/L)、参照電極をAg/Ag⁺として、走査速度50mV/秒、25℃にてCV曲線を測定し、その酸化電位および還元電位より算出した。結果を表5

に示す。

[0083] [表5]

| | H O M O | L U M O | バンドギャップ エネルギー |
|---------|---------|---------|------------------|
| | [e V] | [e V] | [e V] |
| 実施例 8 | 5 . 3 | 2 . 8 | 2 . 5 |
| 実施例 9 | 5 . 3 | 2 . 7 | 2 . 6 |
| 実施例 1 0 | 5 . 2 | 2 . 8 | 2 . 4 |

[0084] また、実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類の1-メチル-2-ピロリドン溶液(濃度: 1.0×10^{-6} g/mL)を調製し、蛍光波長を蛍光分光光度計(株式会社日立製作所、商品名 F-3000)により測定した。結果を表6に示す。

[0085] [表6]

| | 蛍光波長 [n m] |
|---------|-----------------|
| 実施例 8 | 4 7 9 |
| 実施例 9 | 4 7 8 |
| 実施例 1 0 | 4 6 1 |

[0086] 表4より、実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類は、種々の溶媒に溶解することがわかる。表5より、実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類は、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料に好適なエネルギー順位を有していることがわかる。表6より、実施例8～10で得られたポリアミノピリジン類は、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料に好適な蛍光特性を有していることがわかる。

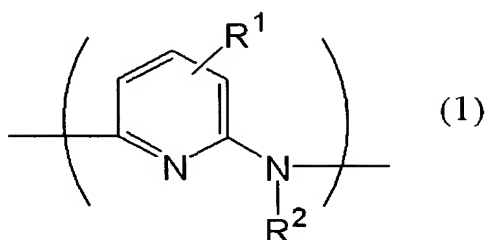
産業上の利用可能性

[0087] 本発明により、電池用活物質、高分子型有機エレクトロルミネッセンス材料等に好適に用いられる新規なポリアミノピリジン類およびその製造方法が提供される。

請求の範囲

[1] 下記一般式(1)；

[化1]



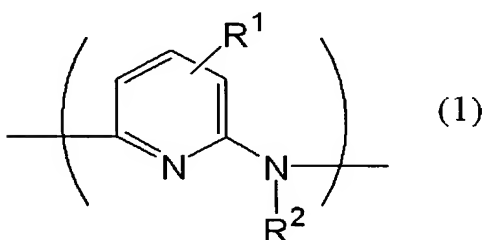
(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいフェニル基または置換基を有してもよいピリジル基を示す。)

で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類。

[2] 前記一般式(1)において、 R^1 が水素原子であって、 R^2 がフェニル基またはピリジル基である請求項1に記載のポリアミノピリジン類。

[3] 下記一般式(1)；

[化2]



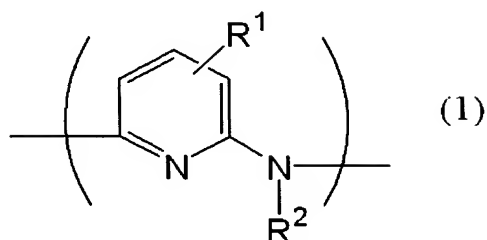
(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいピリミジル基、置換基を有してもよいナフチル基または置換基を有してもよいキノリル基を示す。)

で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類。

[4] 前記一般式(1)において、 R^1 が水素原子であって、 R^2 がピリミジル基、ナフチル基またはキノリル基である請求項3に記載のポリアミノピリジン類。

[5] 下記一般式(1)；

[化3]



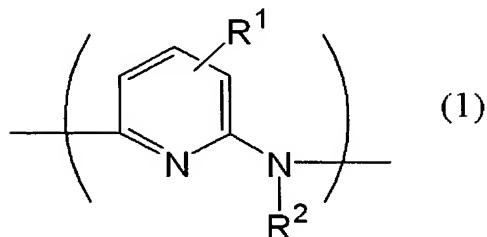
(式中、R¹は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、R²は置換基を有しても良いアントリル基、置換基を有してもよいピレニル基を示す。)

で表される構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類。

[6] 前記一般式(1)において、R¹が水素原子であって、R²がアントリル基またはピレニル基である請求項5に記載のポリアミノピリジン類。

[7] 下記一般式(1)；

[化4]

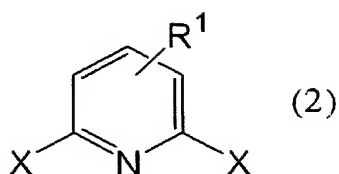


(式中、R¹は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、R²は置換基を有してもよいフェニル基または置換基を有してもよいピリジル基を示す。)

で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類の製造方法であって、

下記一般式(2)；

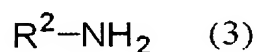
[化5]



(式中、 R^1 は前記一般式(1)と同様である。また、Xはハロゲン原子を示す。)

で表される2, 6-ジハロゲノピリジン類と下記一般式(3)；

[化6]

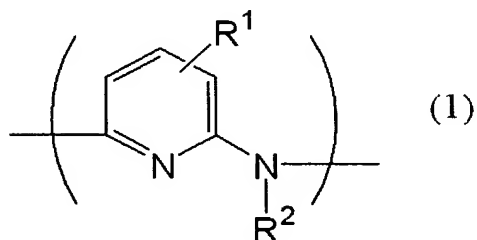


(式中、 R^2 は前記一般式(1)と同様である。)

で表される芳香族アミン化合物とを、パラジウム化合物およびホスフィン化合物を触媒とし、塩基の存在下、反応させることを特徴とするポリアミノピリジン類の製造方法。

[8] 下記一般式(1)；

[化7]

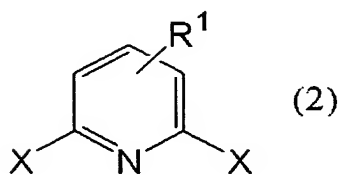


(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有してもよいピリミジル基、置換基を有してもよいナフチル基または置換基を有してもよいキノリル基を示す。)

で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類の製造方法であって、

下記一般式(2)；

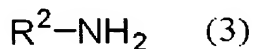
[化8]



(式中、 R^1 は前記一般式(1)と同様である。また、Xはハロゲン原子を示す。)

で表される2, 6-ジハロゲノピリジン類と下記一般式(3)；

[化9]

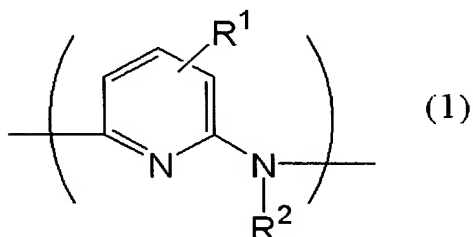


(式中、 R^2 は前記一般式(1)と同様である。)

で表される芳香族アミン化合物とを、パラジウム化合物およびホスフィン化合物を触媒とし、塩基の存在下、反応させることを特徴とするポリアミノピリジン類の製造方法。

[9] 下記一般式(1)；

[化10]

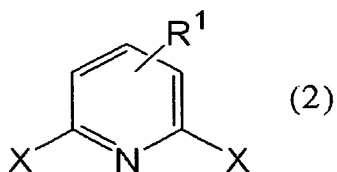


(式中、 R^1 は水素原子、炭素数1～10のアルキル基、アルコキシ基、アルカノイル基、カルバモイル基またはシアノ基を、 R^2 は置換基を有しても良いアントリル基または置換基を有してもよいピレニル基を示す。)

で表される繰り返し構造単位を有し、数平均分子量が500～1000000の範囲であるポリアミノピリジン類の製造方法であって、

下記一般式(2)；

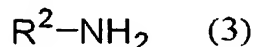
[化11]



(式中、 R^1 は前記一般式(1)と同様である。また、Xはハロゲン原子を示す。)

で表される2, 6-ジハロゲノピリジン類と下記一般式(3)；

[化12]



(式中、 R^2 は前記一般式(1)と同様である。)

で表される芳香族アミン化合物とを、パラジウム化合物およびホスフィン化合物を触媒とし、塩基の存在下、反応させることを特徴とするポリアミノピリジン類の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014259

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08G73/02, G08G73/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08G73/00-26

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L, JOIS

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A | US 2003-64247 A (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.), 03 April, 2003 (03.04.03), Full text & EP 1281745 A1 & JP 2003-155476 A & KR 2003-11640 A | 1-9 |
| A | JP 61-85440 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 01 May, 1986 (01.05.86), Full text (Family: none) | 1-9 |
| A | JP 7-20514 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 24 January, 1995 (24.01.95), Claims; examples (Family: none) | 1-9 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 November, 2004 (12.11.04)Date of mailing of the international search report
30 November, 2004 (30.11.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014259

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A | JP 6-316631 A (Tosoh Corp.), 15 November, 1994 (15.11.94), Full text (Family: none) | 1-9 |
| A | JP 6-271668 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 27 September, 1994 (27.09.94), Claims; examples (Family: none) | 1-9 |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G73/02, C08G73/06

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G73/00-26

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L, JOIS

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|------------------|
| A | US 2003-64247 A (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LT D.) 2003. 04. 03, 全文 & EP 1281745 A 1 & JP 2003-155476 A & KR 2003-11640 A | 1-9 |
| A | JP 61-85440 A (昭和電工株式会社) 1986. 05. 01, 全文 (ファミリーなし) | 1-9 |
| A | JP 7-20514 A (大阪瓦斯株式会社) 1995. 01. 24, 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし) | 1-9 |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 11. 2004.

国際調査報告の発送日

30.11.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

富士 良宏

4 J

8830

電話番号 03-3581-1101 内線 6829

様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (2004年1月)